

539,000

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局(43) 国際公開日
2005年1月13日 (13.01.2005)

PCT

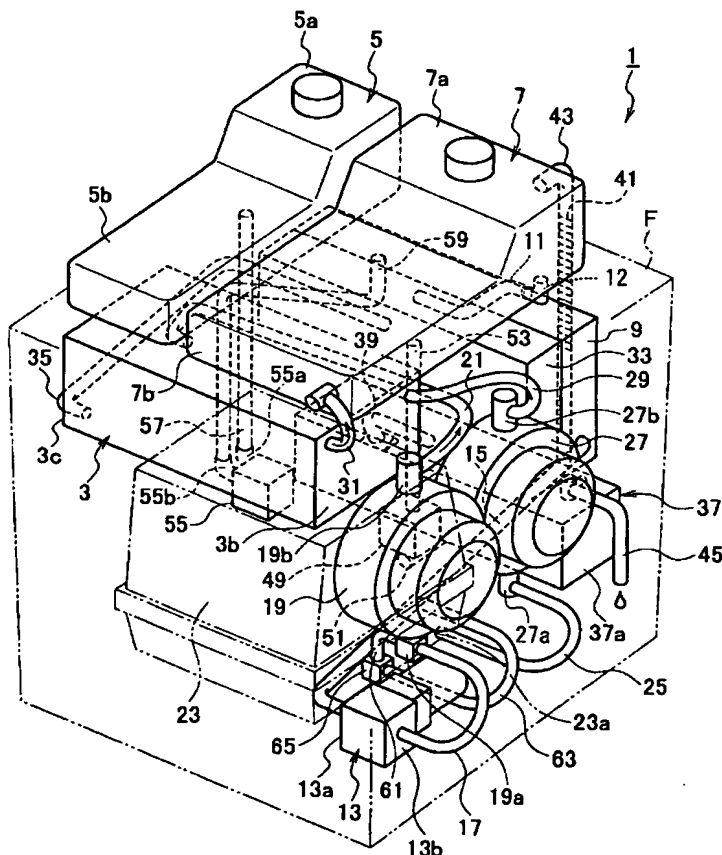
(10) 国際公開番号
WO 2005/004267 A1

- (51) 国際特許分類: H01M 8/04 (72) 発明者; および
(21) 国際出願番号: PCT/JP2004/008893 (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 村松 恭行 (MURAMATSU, Yasuyuki) [JP/JP]; 〒4388501 静岡県磐田市新貝2500番地 ヤマハ発動機株式会社内 Shizuoka (JP). 幸田 秀夫 (KOHDA, Hideo) [JP/JP]; 〒4388501 静岡県磐田市新貝2500番地 ヤマハ発動機株式会社内 Shizuoka (JP). 塩澤 総一 (SHIOZAWA, Souichi) [JP/JP]; 〒4388501 静岡県磐田市新貝2500番地 ヤマハ発動機株式会社内 Shizuoka (JP).
(22) 国際出願日: 2004年6月24日 (24.06.2004)
(25) 国際出願の言語: 日本語
(26) 国際公開の言語: 日本語
(30) 優先権データ:
特願2003-270208 2003年7月1日 (01.07.2003) JP
特願2003-406032 2003年12月4日 (04.12.2003) JP
(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): ヤマハ発動機株式会社 (YAMAHA MOTOR CO., LTD.) [JP/JP]; 〒4388501 静岡県磐田市新貝2500番地 Shizuoka (JP). (74) 代理人: 辰巳 忠宏 (TATSUMI, Tadahiro); 〒5430001 大阪府大阪市天王寺区上本町5丁目2番11号 上六新興産ビル8階 Osaka (JP).

[続葉有]

(54) Title: DIRECT METHANOL FUEL CELL SYSTEM

(54) 発明の名称: ダイレクトメタノール型燃料電池システム



(57) Abstract: A direct methanol fuel cell system (1) is disclosed which ensures stable placement and enables to reduce influence of impact from outside to a fuel cell stack (3). The fuel cell system (1) comprises an aqueous solution tank (7) for containing an aqueous methanol solution, a fuel tank (5) for containing a methanol fuel to be supplied to the aqueous solution tank (7), and a fuel cell stack (3) to which the aqueous methanol solution is supplied from the aqueous solution tank (7) for generating electrical energy through electrochemical reaction. In this system, the fuel tank (5) and the aqueous solution tank (7) are respectively arranged in a higher position relative to the fuel cell stack (3).

(57) 要約: 配置状態が安定しかつ周囲からの衝撃による燃料電池セルスタック3の影響を軽減できるダイレクトメタノール型燃料電池システム1を提供する。燃料電池システム1は、メタノール水溶液を収容する水溶液タンク7、水溶液タンク7に供給すべきメタノール燃料を収容する燃料タンク5、および水溶液タンク7からメタノール水溶液が供給され電気化学反応によって電気エネルギーを生成する燃料電池セルスタック3を備える。燃料タンク5および

水溶液タンク7が燃料電池セルスタック3に対して上方側に配置される。

WO 2005/004267 A1



(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告書

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY,

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

明 細 書

ダイレクトメタノール型燃料電池システム

技術分野

- [0001] この発明はダイレクトメタノール型燃料電池システムに関し、より特定のには、メタノールを改質せずに直接(ダイレクトに)発電に利用するダイレクトメタノール型燃料電池システムに関する。

背景技術

- [0002] メタノールを燃料として発電に利用する燃料電池システムとして、メタノールを直接発電に利用するダイレクトメタノール型燃料電池{DMFC(Direct Methanol Fuel Cell):以下、単にDMFCともいう}システムが研究・開発されている。
- [0003] DMFCシステムにおいては、メタノールを改質する設備を必要としないため、システム全体を簡単かつ軽量に構成することができ、様々な用途への利用が期待されている。

DMFCシステムの一例として、出力が2.5kWのDMFCシステムが以下の文献1に開示されている。

非特許文献1:Holger Janssen, Marcus Noelke, Walter Zwaygardt, Hendrik Dohle, Juergen Mergel, Detlef Stolten, "DMFC SYSTEMS: 2.5 KW CLASS IN COMPACT DESIGN", Institute for Materials and Processes in Energy Systems
Forschungszentrum Juelich GmbH 52425 Juelich, Germany

発明の開示

発明が解決しようとする課題

- [0004] しかしながら、上記文献1に開示されたDMFCシステムでは、燃料タンクが燃料電池セルスタックの斜め下側に配置されており、さらに燃料電池セルスタックの下方中央部に熱交換器が配置されている。
- [0005] このため、DMFCシステム全体から見ると重量の嵩む燃料電池セルスタックが高位置に配置され、DMFCシステムの重心が高くなる。したがって、DMFCシステムの配置は比較的不安定になり、また、たとえばDMFCシステムの上方側からの衝撃によ

って燃料電池セルスタックが影響を受け易い。

- [0006] それゆえに、この発明の主たる目的は、配置状態が安定しかつ周囲からの衝撃による燃料電池セルスタックの影響を軽減できる、ダイレクトメタノール型燃料電池システムを提供することである。

課題を解決するための手段

- [0007] この発明のある見地によれば、メタノール水溶液を収容する水溶液タンク、水溶液タンクに供給すべきメタノール燃料を収容する燃料タンク、および水溶液タンクからメタノール水溶液が供給され電気化学反応によって電気エネルギーを生成する燃料電池セルスタックを備え、燃料タンクおよび水溶液タンクが燃料電池セルスタックに対して上方側に配置される、ダイレクトメタノール型燃料電池システムが提供される。
- [0008] この発明では、燃料タンクおよび水溶液タンクを重量の嵩む燃料電池セルスタックに対して上方側に配置することによって燃料電池システムの重心を低くできる。したがって、燃料電池システムの配置状態の安定性を上げることができ、また、燃料電池システムに対して上方側から衝撃があった場合でも、燃料タンクおよび水溶液タンクにより当該衝撃をブロックすることができ、燃料電池セルスタックに対する影響を抑制することができる。
- [0009] 好ましくは、燃料電池セルスタックの下方側に配置され燃料電池セルスタックに対して酸素を含む空気を供給するエアポンプをさらに含む。このように重量の大きいエアポンプを下側に配置することによって、燃料電池システムの重心をさらに低くでき、燃料電池システムの安定性が増し振動に対しても強くなる。
- [0010] また好ましくは、燃料タンクおよび水溶液タンクが略同一の高さに並置される。燃料タンクおよび水溶液タンクの下方側に、燃料タンクから与えられたメタノール燃料を圧送して水溶液タンクに供給する燃料ポンプが配置される。この場合、燃料タンクに収容されたメタノール燃料の液面高さと、水溶液タンクに収容されたメタノール水溶液の液面高さとを略一致させることができる。したがって、燃料タンクおよび水溶液タンクの下方側に配置された燃料ポンプを用いて燃料タンクから水溶液タンクへメタノール燃料を供給する際に、各タンクの液面の差に起因する燃料ポンプの入口と出口との間の圧力差を小さくすることができる。その結果、比較的小さな吐出性能を有する燃

料ポンプを用いることができ、燃料ポンプを容易に設計・製作することができ、ダイレクトメタノール型燃料電池システム全体の設計・製作コストを低減することができる。また、燃料ポンプを燃料タンクの下方側に配置することによって、燃料タンクから燃料ポンプへメタノール燃料を重力によって容易に供給できる。

- [0011] さらに好ましくは、燃料タンクが水溶液タンクの上方側に配置される。この場合、重力を利用することにより、燃料ポンプを用いることなく添加バルブの開閉によって燃料タンクからのメタノール燃料を水溶液タンクへ供給できる。このようにポンプよりも安価な添加バルブを利用することができ、燃料電池システム全体のコストを低減できる。

好ましくは、水溶液タンクから出力されたメタノール水溶液を熱交換して燃料電池セルスタック側へ送る熱交換器が燃料電池システム側方に配置される。この場合、熱交換器が外気に触れやすくなるので熱交換効率を向上させ、水溶液タンクおよび燃料タンクを上方に配置させることが可能となる。

- [0012] また好ましくは、燃料電池セルスタックから排出された水分を気液分離する気液分離器が燃料電池セルスタックと熱交換器との間に介挿される。この場合、気液分離器の稼働によって発生する冷却空気によって燃料電池セルスタックを冷却できる。

- [0013] さらに好ましくは、熱交換パイプおよび気液分離パイプのそれぞれの少なくとも一部が相互に対向するように、気液分離器が配置される。この場合、熱交換器系(熱交換器および気液分離器)の設置スペースを減少させることができ、ひいては燃料電池システム全体をコンパクトにすることができる。

- [0014] 好ましくは、熱交換器および気液分離器とコントローラとが、燃料電池セルスタックの下方側に配置されるエアポンプを挟んで対向するように配置される。この場合、コントローラを熱交換器および気液分離器から離間させることができる。したがって、熱交換器および気液分離器の熱交換作用に起因して熱交換器および気液分離器に温度上昇が生じても、その温度上昇のコントローラに対する影響を、コントローラが熱交換器系(熱交換器、気液分離器)に隣接して配置されている場合と比べて軽減することができる。その結果、制御系であるコントローラの温度上昇を抑制することができる。

- [0015] また好ましくは、気液分離器は、燃料電池セルスタックから排出された水分を重力

により流下可能に構成された気液分離パイプを含む。この場合、気液分離により得られた水を含む水分を重力により容易に水タンク側に出力することができる。

[0016] さらに好ましくは、燃料タンクはその側面に第1嵌合部を有し、水溶液タンクはその側面に第1嵌合部に嵌合すべき第2嵌合部を有する。この場合、第1嵌合部を第2嵌合部に嵌合することによって、燃料タンクと水溶液タンクとを一体型タンクとして構成できるので、燃料電池システムを小さくできる。

[0017] 好ましくは、水タンク内の水を排出するために水タンクに接続されるドレインパイプ、およびドレインパイプの排出側先端部に着脱自在に設けられる排水阻止用のキャップを含む。燃料電池システムを長期間使用しない場合、キャップをドレインパイプの排出側先端部に装着すれば、ドレインパイプからの排水を阻止しつつ、少なくとも燃料電池セルスタックの電解質膜(固体高分子膜)が水没するまで水溶液タンクの水位を上昇させておくことができ、電解質膜の乾燥を防止することができる。したがって、燃料電池システムを長期間使用しない場合であっても、電解質膜の乾燥による燃料電池セルスタックの性能劣化は生じない。なお、当該キャップに代えてバルブが用いられてもよい。

[0018] また好ましくは、水タンク内の水を排出するために水タンクに接続されるドレインパイプを含み、ドレインパイプの排出側先端部を燃料電池セルスタックの上面高さよりも高い位置に配置できるように、ドレインパイプは伸縮自在にかつその排出側先端部を回動自在に構成される。ドレインパイプの排出側先端部を、燃料電池セルスタック上面高さよりも高い位置に配置することによって、ドレインパイプからの排水を阻止しつつ、少なくとも燃料電池セルスタックの電解質膜を水没させることができる。したがって、燃料電池システムを長期間使用しない場合であっても、電解質膜の乾燥による燃料電池セルスタックの性能劣化は生じない。

図面の簡単な説明

[0019] [図1]この発明の一実施形態を概略的に示す斜視図である。

[図2]図1に示す実施形態を概略的に示す正面図である。

[図3]図1に示す実施形態を概略的に示す右側面図である。

[図4]図1に示す実施形態で用いられる熱交換器および気液分離器を拡大して示す

斜視図である。

[図5]図1に示す実施形態の概略構成を示すブロック図である。

[図6]図1に示す実施形態の変形例を概略的に示す正面図である。

[図7]図1に示す実施形態の他の変形例を概略的に示す正面図である。

[図8](a)は燃料タンクおよび水溶液タンクならびにそれらの取り付け状態の概略構成を示す平面図、(b)はその長手側側面図、(c)は(a)におけるA-A矢視断面図である。

[図9]この発明の他の実施形態の概略構成を示すブロック図である。

符号の説明

- [0020] 1, 1A, 1B, 1C ダイレクトメタノール型燃料電池システム
- 3 燃料電池セルスタック
- 5, 114 燃料タンク
- 7, 116 水溶液タンク
- 9 熱交換器
- 10 熱交換パイプ
- 11, 12, 15, 17, 21, 25, 29, 31, 35, 39, 43, 51, 53, 57, 59 パイプ
- 13 水溶液ポンプ
- 23 エアポンプ
- 33 気液分離器
- 34 気液分離パイプ
- 37 水タンク
- 45, 45b ドレインパイプ
- 49 水ポンプ
- 55 燃料ポンプ
- 81 コントローラ
- 105 キャップ
- 118 嵌め込み凸部
- 120 嵌め込み凹部

132, 134 添加バルブ

発明を実施するための最良の形態

[0021] 以下、図面を参照して、この発明の実施形態について説明する。

図1ー図5を参照して、この発明の一実施形態のダイレクトメタノール型燃料電池システム(以下、単に「燃料電池システム」という)1は、たとえば約400Wー500Wクラスの出力を有する据え置き型システムとして構成されており、略ボックス状(直方体状)の筐体Fを含む。

[0022] 筐体F内には燃料電池セルスタック(以下、単に「セルスタック」という)3が固定されている。セルスタック3は、メタノールに基づく水素と酸素との電気化学反応により電気エネルギーを生成することができる単電池セルを複数個積層(スタック)して構成されている。燃料電池セルスタック3を構成する各単電池セルは、固体分子膜等から構成された電解質(電解質膜)と、この電解質を挟んで互いに対向する燃料極(アノード)および空気極(カソード)とを備えている。

[0023] 筐体Fの上面ひいてはセルスタック3の上方側には燃料タンク5および水溶液タンク7が固定されている。燃料タンク5および水溶液タンク7は、ともに略直方体状に構成されており、ともにセルスタック3の長手方向(積層方向)に直交する方向(セルスタック3の短手方向)に沿って配置されている。燃料タンク5および水溶液タンク7は、それぞれの高さが略一致する位置に、セルスタック3の積層方向に並置されている。この実施形態では、燃料タンク5と水溶液タンク7とは、それぞれのタンク底面の高さが略一致するように配置されている。

[0024] 燃料タンク5には、セルスタック3の上記電気化学反応の燃料となるメタノール燃料(高濃度(たとえば約50%)のメタノール水溶液)が貯蔵されており、水溶液タンク7には、燃料タンク5に貯蔵されたメタノール燃料をセルスタック3の電気化学反応に適した濃度(たとえば約3%)に希釈したメタノール水溶液が貯蔵されている。

[0025] また、セルスタック3の奥側(図3でいえばセルスタック3の右側)であり、かつ燃料タンク5および水溶液タンク7それぞれの一端部5aおよび7aの下側には、ラジエータからなる熱交換器9が設けられている。熱交換器9は、セルスタック3の積層方向に平行な状態で配置されている。水溶液タンク7と熱交換器9とはパイプ11によって接続さ

れている。パイプ11の一端部は水溶液タンク7の下面に取り付けられるパイプ12に接続され、パイプ11の他端部は熱交換器9の熱交換パイプ10の上端部10aに接続されている。

[0026] さらに、筐体F内の底部であってかつ水溶液タンク他端部7bの下方には水溶液ポンプ13が配置されている。水溶液ポンプ13と熱交換器9とはパイプ15によって接続されている。パイプ15の一端部は、熱交換器9の熱交換パイプ10の下端部10bに接続され、パイプ15は熱交換器側から水溶液ポンプ側に向かって斜め下方に延び、パイプ15の他端部は、水溶液ポンプ13の一側面13aに接続されている。

[0027] 水溶液ポンプ13にはパイプ17を介してフィルタ19が接続されている。フィルタ19は水溶液ポンプ13の上方に配置されている。パイプ17の一端部は、水溶液ポンプ13の一側面13aに平行な他側面13bに接続され、パイプ17は斜め上方に略U字状に屈曲して延び、パイプ17の他端部は、フィルタ19の下部に設けられている取り付けパイプ19aに接続されている。フィルタ19によってパイプ17を流れるメタノール水溶液内の不純物が取り除かれる。

[0028] また、水溶液ポンプ13およびフィルタ19間のパイプ17には、パイプ17を流れるメタノール水溶液の濃度を検出するための濃度センサ20が取り付けられている。

[0029] フィルタ19の上部に設けられている出力パイプ19bにはパイプ21が接続されている。パイプ21は、セルスタック3のうちフィルタ19に面する短手側の側面3bに沿って熱交換器側へ延出し、略90度屈曲してセルスタック3の長手側の側面3aに沿って延び、さらに側面3bに平行な短手側の側面3c側に廻り込み、セルスタック3の側面3cの下側一方角部近傍に形成された燃料入口部I1に接続されている。

[0030] さらに、セルスタック3の下方には、酸素を含む空気を供給するためエアポンプ23が配置されており、エアポンプ23にはパイプ25を介してフィルタ27が接続されている。フィルタ27はフィルタ19の隣りに配置されている。パイプ25の一端部は、エアポンプ23の水溶液ポンプ13側の側面下端部に設けられたポンプ出口部23aに接続され、パイプ25は上方に略U字状に屈曲して延び、パイプ25の他端部は、フィルタ27の下部に設けられている取り付けパイプ27aに接続されている。フィルタ27によってパイプ25を流れる空気内の不純物が取り除かれる。

- [0031] フィルタ27の上部に設けられている出力パイプ27bと、セルスタック3の側面3bの上側一方角部近傍に設けられた空気入口部I2とはパイプ29によって接続されている。
- [0032] セルスタック3の側面3bの上側他方角部近傍の排ガス出口部I3と、水溶液タンク7の他端部7bとはパイプ31によって接続されている。
- [0033] 一方、セルスタック3の側面3aと熱交換器9との間にはラジエータからなる気液分離器33が介挿されている。セルスタック3と気液分離器33とはパイプ35によって接続されている。パイプ35の一端部は、セルスタック3の側面3cの下側他方角部近傍の水出口部I4に接続され、パイプ35の他端部は気液分離器33の気液分離パイプ34の上端部34aに接続されている。
- [0034] そして、筐体F内の底部であってかつ熱交換器9および気液分離器33の下方には、セルスタック3の積層方向に沿って直方体状の水タンク37が配置されている。水タンク37と気液分離器33とはパイプ39によって接続されている。パイプ39の一端部は、水タンク37のタンク本体37aの上面に形成された水供給孔Hに接続され、パイプ39の他端部は、気液分離器33の気液分離パイプ34の下端部34bに接続されている。
- [0035] 水溶液タンク7の一端部7aと水タンク37のタンク本体37aとはパイプ43によって接続されており、パイプ43にはメタノールトラップ(冷却フィン)41が介挿されている。
- [0036] 水タンク37には、そのタンク本体37aに収容された水の一部および気体(排ガス)をそれぞれ排出するためのドレインパイプ45が取り付けられている。
- [0037] さらに、水タンク37には水ポンプ49がパイプ51を介して接続されている。水ポンプ49と水溶液タンク7とはパイプ53を介して接続されている。
- [0038] そして、筐体F内の底部であってかつ燃料タンク5の下方には燃料ポンプ55が配置されている。
- [0039] 燃料ポンプ55と燃料タンク5とはパイプ57によって接続されている。パイプ57の一端部は燃料タンク5の下面に接続され、パイプ57は下方すなわち燃料ポンプ55に向かって延び、パイプ57の他端部はパイプ57に入口部55aを介して接続されている。
- [0040] 燃料ポンプ55の出口部55bにはパイプ59が接続され、パイプ59はパイプ57に沿

って上方に延び、途中で水溶液タンク側へ屈曲して水溶液タンク7に接続されている。

[0041] 一方、取り付けパイプ19aから分岐して下方に延びる分岐パイプ61は、パイプ15から分岐する分岐パイプ63にバルブ65を介して接続されている。

[0042] そして、燃料タンク5には液面検出センサ71が、水溶液タンク7には液面検出センサ73が、セルスタック3の燃料入口部I1付近には温度センサ75がそれぞれ取り付けられている。液面検出センサ71によって、燃料タンク5内のメタノール燃料S1の液面の高さが検出され、液面検出センサ73によって、水溶液タンク7内のメタノール水溶液S2の液面の高さが検出され、温度センサ75によって、燃料入口部I1を介して供給されるメタノール水溶液の温度が検出される。

[0043] さらに、エアポンプ23を挟んで熱交換器9および気液分離器33に対向するようにコントローラ81が配置されている(図3参照)。コントローラ81は、濃度センサ20、液面検出センサ71、液面検出センサ73および温度センサ75に電氣的に接続されている。コントローラ81は、基板上にマイクロプロセッサ等の電気回路部品を搭載して構成されている。

[0044] 図4に示すように、熱交換器9の熱交換パイプ10は、たとえばステンレス等の金属材料を用いて溶接により形成されている。

すなわち、熱交換パイプ10は、垂直方向に間隔を空けて略平行に配列された複数の直線状パイプ部85と、複数の略U字状の継手パイプ部87とを含む。熱交換パイプ10として一端部10aから他端部10bまでの1本の連続したパイプを形成できるように、複数の直線状パイプ部85の隣接する端部85aが継手パイプ部87によって交互に接続されている。熱交換パイプ10に対向して冷却用のファン91が取り付けられている。

[0045] 同様に、気液分離器33の気液分離パイプ34は、たとえばステンレス等の金属材料を用いて溶接により形成されている。

すなわち、気液分離パイプ34は、垂直方向に間隔を空けて略平行に配列された複数の直線状パイプ部93と、複数の略U字状の継手パイプ部95とを含む。気液分離パイプ34として一端部34aから他端部34bまでの1本の連続したパイプを形成できる

ように、複数の直線状パイプ部93の隣接する端部93aが継手パイプ部95によって交互に接続されている。気液分離パイプ34に対向して冷却用のファン97が取り付けられている。気液分離パイプ34は、セルスタック3から排出された水分を重力によって流下可能に構成される。

[0046] 熱交換器9および気液分離器33は、熱交換パイプ10の一部である継手パイプ部87と気液分離パイプ34の一部である継手パイプ部95とが互いに対向するように配置されている。

[0047] つぎに、燃料電池システム1における発電時の動作について説明する。

水溶液タンク7内の約3%の濃度に希釈されたメタノール水溶液は、水溶液ポンプ13の駆動によってパイプ11を介して熱交換器9内に流入し、熱交換パイプ10を流れる間にファン91によってセルスタック3に適した温度に冷却(熱交換)される。冷却されたメタノール水溶液は、パイプ15および17を流れ濃度センサ20を経由してフィルタ19に流入して不純物等が除去される。その後、パイプ21および燃料入口部I1を介してセルスタック3のアノード側にダイレクトに供給される。

[0048] 一方、エアポンプ23から供給された空気は、パイプ25を介してフィルタ27に流入して不純物等が除去される。その後、パイプ29および空気入口部I2を介してセルスタック3のカソード側に供給される。

[0049] このとき、セルスタック3の各単電池セルにおけるアノード側では、供給されたメタノール水溶液におけるメタノールと水とが化学反応して二酸化炭素および水素イオンが生成され、生成された水素イオンは、電解質を介してカソード側に流入し、そのカソード側に供給された空気中の酸素と電気化学反応して水および電気エネルギーが生成される。生成された電気エネルギーは図示しない外部回路に供給される。

[0050] 一方、各電池セルにおけるアノード側で生成された二酸化炭素(炭酸ガス)には、未反応のメタノール水蒸気が含まれており、この二酸化炭素は、セルスタック3の排ガス出口部I3およびパイプ31を介して水溶液タンク7に戻される。

[0051] 水溶液タンク7に戻された二酸化炭素は、パイプ43を経由して流れる。このとき、メタノール水蒸気は、メタノールトラップ41によって冷却されてメタノール水溶液として二酸化炭素から分離(トラップ)される。

- [0052] このようにしてパイプ43を流れる二酸化炭素およびメタノール水溶液は、水タンク37のタンク本体37aに流入し、メタノール水溶液は、タンク本体37aに回収され、二酸化炭素は、ドレインパイプ45を介して外部に排出される。
- [0053] 一方、カソード側で生成された水(水蒸気)は、水出口部I4およびパイプ35を介して気液分離器33の気液分離パイプ34に流入し、気液分離パイプ34を流れる間にファン97によって冷却されて気液分離される。気液分離器33によって分離された気体成分および水成分は、パイプ39を介して水タンク37のタンク本体37aに流入し、当該気体成分はドレインパイプ45を介して排気される。
- [0054] そして、タンク本体37a内の回収された成分(水成分+メタノール水溶液)は、水ポンプ49の駆動によって水溶液タンク7に戻される。
- [0055] 一方、コントローラ81は、濃度センサ20によって検出されたメタノール水溶液の濃度を表す濃度信号、液面検出センサ71および73によって検出されたそれぞれのタンク内のメタノール燃料およびメタノール水溶液の液面を表す液面検出信号、温度センサ75によって検出されたセルスタック3へダイレクトに供給されるメタノール水溶液の温度を表す信号、およびセルスタック3によって発電された電力(電流)の検出信号に基づいて、たとえば水ポンプ49の駆動制御および燃料ポンプ55の駆動制御をそれぞれ行う。
- [0056] すなわち、コントローラ81は、水溶液タンク7内のメタノール水溶液の濃度が上記電気化学反応に適した濃度(約3%)よりも高い場合には、燃料ポンプ55の駆動を停止して水ポンプ49を駆動させて水タンク37の水を水溶液タンク7に供給することにより、水溶液タンク7のメタノール水溶液の濃度を上記電気化学反応に適した濃度に維持している。
- [0057] また、水溶液タンク7内のメタノール水溶液の濃度が上記電気化学反応に適した濃度(約3%)よりも低い場合には、水ポンプ49の駆動を停止して燃料ポンプ55を駆動させ、燃料タンク5のメタノール燃料を水溶液タンク7に供給することにより、水溶液タンク7のメタノール水溶液の濃度を上記電気化学反応に適した濃度に維持している。この濃度制御によって、セルスタック3内においてメタノール水溶液内の未反応メタノールが電解質を透過してカソード側へ流入する、いわゆるクロスオーバを低く維持す

ることができる。

[0058] このような燃料電池システム1によれば、重いセルスタック3の下方側に重いエアポンプ23を配置し、セルスタック3の上方側に燃料タンク5および水溶液タンク7を配置することによって、燃料電池システム1の重心を低くできる。したがって、燃料電池システム1の配置状態の安定性を上げることができ振動に対しても強くでき、また、燃料電池システム1に対して上方側から衝撃があった場合でも、燃料タンク5および水溶液タンク7により当該衝撃をブロックすることができ、燃料電池セルスタック1に対する影響を抑制することができる。さらに、燃料電池システム1を小型にでき体積効率を向上できる。

[0059] また、燃料タンク5および水溶液タンク7を略同一の高さに並置することによって、燃料タンク5に収容されたメタノール燃料の液面高さと、水溶液タンク7に収容されたメタノール水溶液の液面高さとを略一致させることができる。したがって、燃料タンク5および水溶液タンク7の下方側に配置された燃料ポンプ55を駆動させて燃料タンク5から水溶液タンク7へメタノール燃料を供給する際に、各タンクの液面の差に起因する燃料ポンプ55の入口部55aと出口部55bとの間の圧力差を小さくすることができる。その結果、比較的小さな吐出性能を有する燃料ポンプ55を用いることができ、燃料ポンプ55を容易に設計・製作することができ、燃料電池システム全体の設計・製作コストを低減することができる。また、燃料ポンプ55を燃料タンク5の下方側に配置することによって、燃料タンク5から燃料ポンプ55へメタノール燃料を重力により容易に供給できる。ここでいう燃料タンク5と水溶液タンク7とが略同一の高さとは、水溶液タンク7の通常運転時の液面高さに対して燃料タンク5内のメタノール燃料の液面の高さが $\pm 10\text{cm}$ 以内に収まるように両タンクがレイアウトされることをいい、好ましくは $\pm 5\text{cm}$ 以内に設定される。

[0060] さらに、水溶液タンク7から出力されたメタノール水溶液を熱交換してセルスタック側へ送る熱交換器9が燃料電池システム側方に配置されることによって、熱交換器9が外気に触れやすくなるので熱交換効率を向上させ、水溶液タンク7および燃料タンク5を上方に配置させることが可能となる。

[0061] また、セルスタック3から排出された水分を気液分離する気液分離器33がセルスタ

ック3と熱交換器9との間に介挿されるので、気液分離器33の稼働によって発生する冷却空気によってセルスタック3を冷却できる。

- [0062] また、熱交換器9および気液分離器33は、熱交換器9の熱交換パイプ10の継手パイプ部87と気液分離機33の気液分離パイプ34の継手パイプ部95とが互いに対向するように配置されている。このため、熱交換器系(熱交換器9および気液分離器33)の設置スペースを、直線状パイプ部85および93に沿った方向において減少させることができ、その熱交換器系を含む燃料電池システム全体(筐体F)をコンパクトにすることができる。
- [0063] さらに、熱交換器9および気液分離器33とコントローラ81とが、エアポンプ23を挟んで対向するように配置されるので、コントローラ81を熱交換器9および気液分離器33から離間させることができる。したがって、熱交換器9および気液分離器33の熱交換作用に起因して熱交換器9および気液分離器33に温度上昇が生じても、その温度上昇のコントローラ81に対する影響を、コントローラ81が熱交換器系(熱交換器9、気液分離器33)に隣接して配置されている場合と比べて軽減することができる。その結果、制御系であるコントローラ81の温度上昇を抑制することができる。
- [0064] また、セルスタック3の水出口部I4はパイプ35を介して気液分離器33の気液分離パイプ34の上端部34aに接続されているので、水蒸気から気液分離により得られた水を含む水分は重力によって容易に水タンク37側に出力することができる。
- [0065] なお、図6に示す燃料電池システム1Aのように、ドレインパイプ45の排出側先端部に係合部(たとえば、雌螺子部)45aを形成し、係合部45aに係脱自在なキャップ105を取り付けてもよい。その他の構成については図2に示す燃料電池システム1と同様であるのでその重複する説明は省略する。
- [0066] 燃料電池システム1Aによれば、燃料電池システム1Aを長期間使用しない場合、キャップ105をドレインパイプ45の排出側先端部に装着すれば、ドレインパイプ45からの排水を阻止しつつ、少なくとも燃料電池セルスタック3の電解質膜が水没するまで水溶液タンク7の水位を上昇させておくことができ、電解質膜の乾燥を防止することができる。したがって、燃料電池システム1Aを長期間使用しない場合であっても、電解質膜の乾燥によるセルスタック3の性能劣化は生じない。

- [0067] さらに、図7に示す燃料電池システム1Bのように、ドレインパイプ45に代えてドレインパイプ45bを用いてもよい。ドレインパイプ45bは伸縮自在かつその排出側先端部45b1を回動自在に構成されている。排出側先端部45b1を回動させかつドレインパイプ45bを伸張させることによって、水溶液タンク7のメタノール水溶液S2の液面の高さよりも高い位置に排出側先端部45b1を配置することができる。その他の構成については図2に示す燃料電池システム1と同様であるのでその重複する説明は省略する。
- [0068] 燃料電池システム1Bによれば、ドレインパイプ45bからの排水を阻止しつつ、少なくともセルスタック3の電解質膜が水没するまで水溶液タンク7の水位を上昇させることができる。したがって、燃料電池システム1Bを長期間使用しない場合であっても、電解質膜の乾燥によるセルスタック3の性能劣化は生じない。
- [0069] ついで、図8(a)ー(c)を参照して、燃料電池システム1に用いられる燃料タンクおよび水溶液タンクの変形例について説明する。
- 燃料タンク114および水溶液タンク116は、直方体状のフレーム117に一体的に取り付けられており、図1に示したように、たとえばセルスタック3の上方に配置されている。
- [0070] すなわち、燃料タンク114および水溶液タンク116は、たとえばPE(ポリエチレン)ブロー成型によって2つの部屋(中空体)構造として一体的に成形されている。
- 燃料タンク114は、平面視および長手側の一側面視でそれぞれ略矩形状を成す中空体である。水溶液タンク116は、略直方体形状から上記矩形状の燃料タンク114を切り欠いた際の残部に対応する形状を有する中空体である。
- [0071] 燃料タンク114および水溶液タンク116それぞれの対向面は互いに略一致した形状を成しており、その一方の対向面(たとえば、水溶液タンク116の対向面)から他方の対向面(たとえば、燃料タンク114の対向面)に向かって複数(たとえば3個)の嵌め込み凸部118が突出されている。
- [0072] このとき、燃料タンク114の対向面における嵌め込み凸部118に対応する位置には、嵌め込み凸部118が嵌入される複数(3個)の嵌め込み凹部120が形成されている。嵌め込み凸部118の嵌め込み凹部120への嵌入によって、水溶液タンク116は燃

料タンク114に対向しかつ離間した状態に配置される。

[0073] 燃料タンク114および水溶液タンク116の対向面間には、断熱材121が充填されている。

燃料タンク114には、メタノール燃料(略50%の高濃度メタノール水溶液)を排出するための出口部122が形成されており、当該出口部122にはパイプ57が接続される。

[0074] また、水溶液タンク116の上面には、メタノール燃料が供給されるための入口部124が形成され、当該入口部124にはパイプ59が接続される。さらに、水溶液タンク116の上面には、水が供給されるための入口部126が形成、当該入口部126にはパイプ53が接続される。

[0075] そして、水溶液タンク116のたとえば下面には、メタノール水溶液を排出するための出口部128が形成され、当該出口部128にはパイプ11が接続される。さらに、水溶液タンク116の短手側の一側面には、反応後の二酸化炭素(未反応のメタノール水蒸気が含まれている)が供給されるための入口部130が形成され、当該入口部130にはパイプ31が接続される。

[0076] そして、水溶液タンク116の上面には、入口部130を介して供給された二酸化炭素を水タンク側へ排出するための出口部131が設けられており、当該出口部131は、パイプ43を介して水タンク37に接続されている。

[0077] このように燃料タンク114および水溶液タンク116を一体化して一体型タンクとすることによって、上述の実施形態と比べて、部品点数を削減することができ、燃料電池システムを小さくできる。

[0078] また、燃料タンク114および水溶液タンク116間に断熱材121を充填しているため、一方の温度変動の他方への影響を抑制することができる。

[0079] さらに、図9を参照して、この発明の他の実施形態の燃料電池システム1Cについて説明する。

燃料電池システム1Cは、燃料電池システム1とは異なるレイアウト構造を有している。

[0080] すなわち、図9に示すように、燃料電池システム1Cでは、燃料タンク5、水タンク37

および気液分離器33が水溶液タンク7より上方に配置されてユニットU1が構成される。水溶液タンク7の下方にセルスタック3が配置されている。パイプ35は、セルスタック3の水出口部I4から気液分離器33の上方側まで上方に立ち上がり、逆U字状に折曲して気液分離器33の気液分離パイプ34の上端部34aに接続されている。そして、水タンク37および水溶液タンク7間を接続するパイプ51の途中に、上述した燃料電池システム1の水ポンプ49に代えて、開閉自在な添加バルブ132が介挿されている。さらに、燃料タンク5および水溶液タンク7間を接続するパイプ57の途中に、燃料電池システム1の燃料ポンプ55に代えて、開閉自在な添加バルブ134が介挿されている。

- [0081] なお、その他の構成、レイアウトおよび発電動作については、燃料電池システム1と同様であるため、その説明は省略する。
- [0082] 燃料電池システム1Cによれば、燃料タンク5、水タンク37および気液分離器33を水溶液タンク7の上方に配置したため、重力を利用することにより、燃料ポンプではなくコントローラ81による添加バルブ132および134の開閉制御によって、燃料タンク5および水タンク37からそれぞれメタノール燃料および水を水溶液タンク7に供給することができる。その結果、ポンプよりも安価な添加バルブを利用することができ、燃料電池システム1C全体のコストを低減することができる。
- [0083] 特に、この構成によれば、セルスタック3の上方に気液分離器33を配置したため、気液分離器33で液化された水分を円滑に水タンク37へ導くことができる。
- [0084] また、水溶液タンク7とセルスタック3とを近接して配置することができるため、メタノール水溶液循環系の圧力損失を小さくすることができる。
- [0085] この発明が詳細に説明され図示されたが、それは単なる図解および一例として用いたものであり、限定であると解されるべきではないことは明らかであり、この発明の精神および範囲は添付された請求の範囲の文言のみによって限定される。

請求の範囲

- [1] メタノール水溶液を収容する水溶液タンク、
前記水溶液タンクに供給すべきメタノール燃料を収容する燃料タンク、および
前記水溶液タンクからのメタノール水溶液が供給され電気化学反応によって電気
エネルギーを生成する燃料電池セルスタックを備え、
前記燃料タンクおよび前記水溶液タンクが前記燃料電池セルスタックに対して上方
側に配置される、ダイレクトメタノール型燃料電池システム。
- [2] 前記燃料電池セルスタックの下方側に配置され前記燃料電池セルスタックに対して
酸素を含む空気を供給するエアポンプをさらに含む、請求項1に記載のダイレクトメ
タノール型燃料電池システム。
- [3] 前記燃料タンクおよび前記水溶液タンクが略同一の高さに並置され、
前記燃料タンクから下方に延びる第1パイプ、
前記水溶液タンクから下方に延びる第2パイプ、ならびに
前記燃料タンクおよび前記水溶液タンクの下方側に配置され、かつ前記第1パイプ
を介して前記燃料タンクに前記第2パイプを介して前記水溶液タンクにそれぞれ接続
される燃料ポンプをさらに含み、
前記燃料ポンプは、前記燃料タンクから前記第1パイプを介して与えられたメタノー
ル燃料を圧送して前記第2パイプを介して前記水溶液タンクに供給する、請求項1に
記載のダイレクトメタノール型燃料電池システム。
- [4] 前記燃料タンクが前記水溶液タンクの上方側に配置され、
前記燃料タンクと前記水溶液タンクとを接続するパイプ、および
前記パイプに介挿される開閉自在な添加バルブをさらに含む、請求項1に記載の
ダイレクトメタノール型燃料電池システム。
- [5] 前記水溶液タンクから出力されたメタノール水溶液を熱交換して前記燃料電池セ
ルスタック側へ送る熱交換器をさらに含み、
前記熱交換器が当該燃料電池システム側方に配置される、請求項1に記載のダイ
レクトメタノール型燃料電池システム。
- [6] 前記燃料電池セルスタックから排出された水分を気液分離する気液分離器、およ

び

当該気液分離によって得られた水を収容する水タンクをさらに含み、
前記気液分離器が前記燃料電池セルスタックと前記熱交換器との間に介挿される、請求項5に記載のダイレクトメタノール型燃料電池システム。

- [7] 前記熱交換器は、前記水溶液タンクから出力されたメタノール水溶液を案内して前記燃料電池セルスタック側へ出力する熱交換パイプを有し、

前記気液分離器は、前記燃料電池セルスタックから排出された水分を案内して前記水タンクへ出力する気液分離パイプを有し、

前記熱交換パイプおよび前記気液分離パイプのそれぞれの少なくとも一部が相互に対向するように前記気液分離器が配置される、請求項6に記載のダイレクトメタノール型燃料電池システム。

- [8] 前記燃料電池セルスタックの下方側に配置され前記燃料電池セルスタックに対して酸素を含む空気を供給するエアポンプ、および

前記エアポンプの一側方に配置され前記水溶液タンクから前記燃料電池セルスタックへ出力されるメタノール水溶液の濃度を制御するコントローラをさらに含み、

前記熱交換器および前記気液分離器と前記コントローラとが、前記エアポンプを挟んで対向するように配置される、請求項6に記載のダイレクトメタノール型燃料電池システム。

- [9] 前記気液分離器は、前記燃料電池セルスタックから排出された水分を重力によって流下可能に構成される気液分離パイプを含む、請求項6に記載のダイレクトメタノール型燃料電池システム。

- [10] 前記燃料タンクはその側面に第1嵌合部を有し、
前記水溶液タンクはその側面に前記第1嵌合部に嵌合すべき第2嵌合部を有する、請求項3に記載のダイレクトメタノール型燃料電池システム。

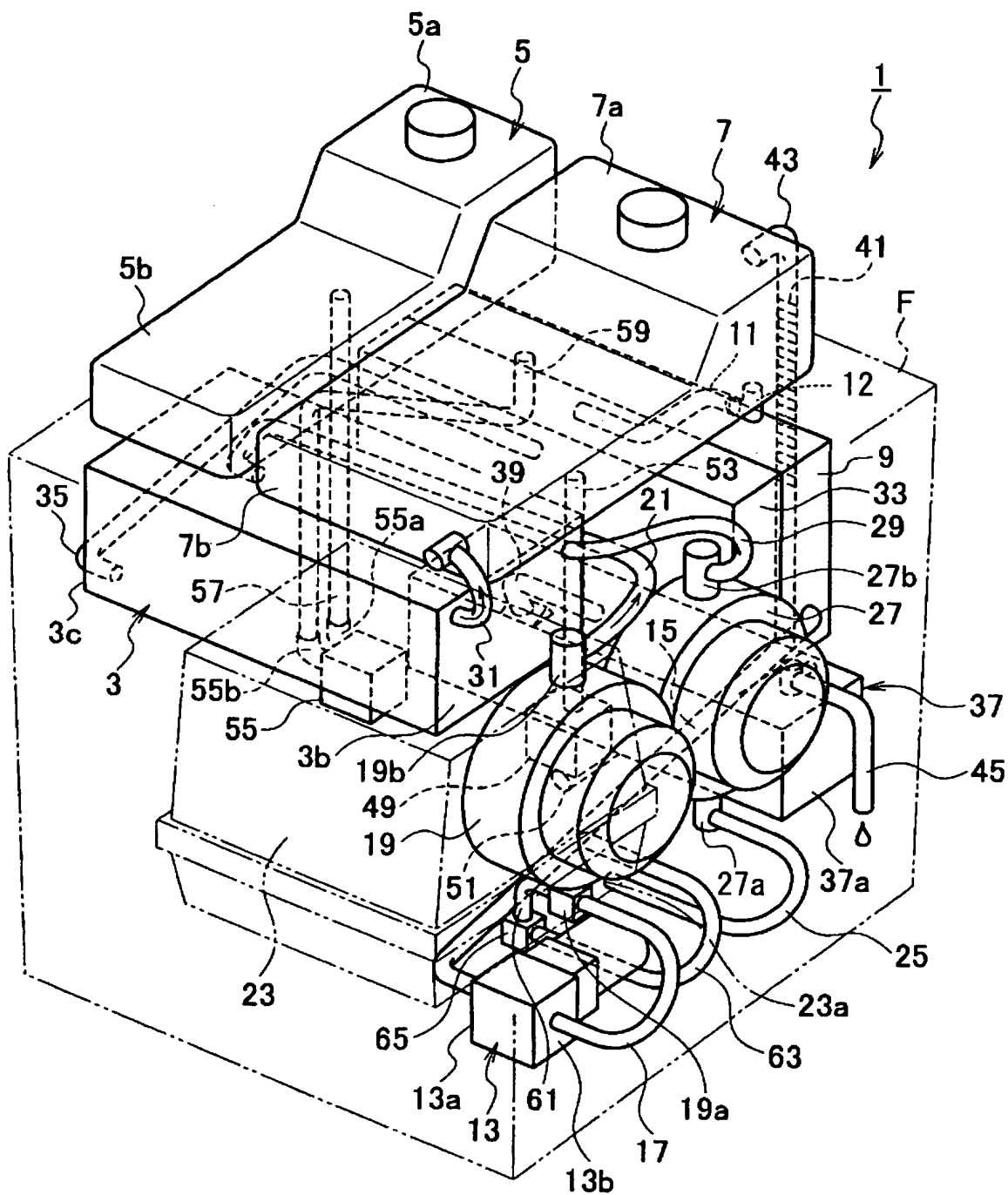
- [11] 前記水タンク内の水を排出するために前記水タンクに接続されるドレインパイプ、および

前記ドレインパイプの排出側先端部に着脱自在に設けられる排水阻止用のキャップをさらに含む、請求項1に記載のダイレクトメタノール型燃料電池システム。

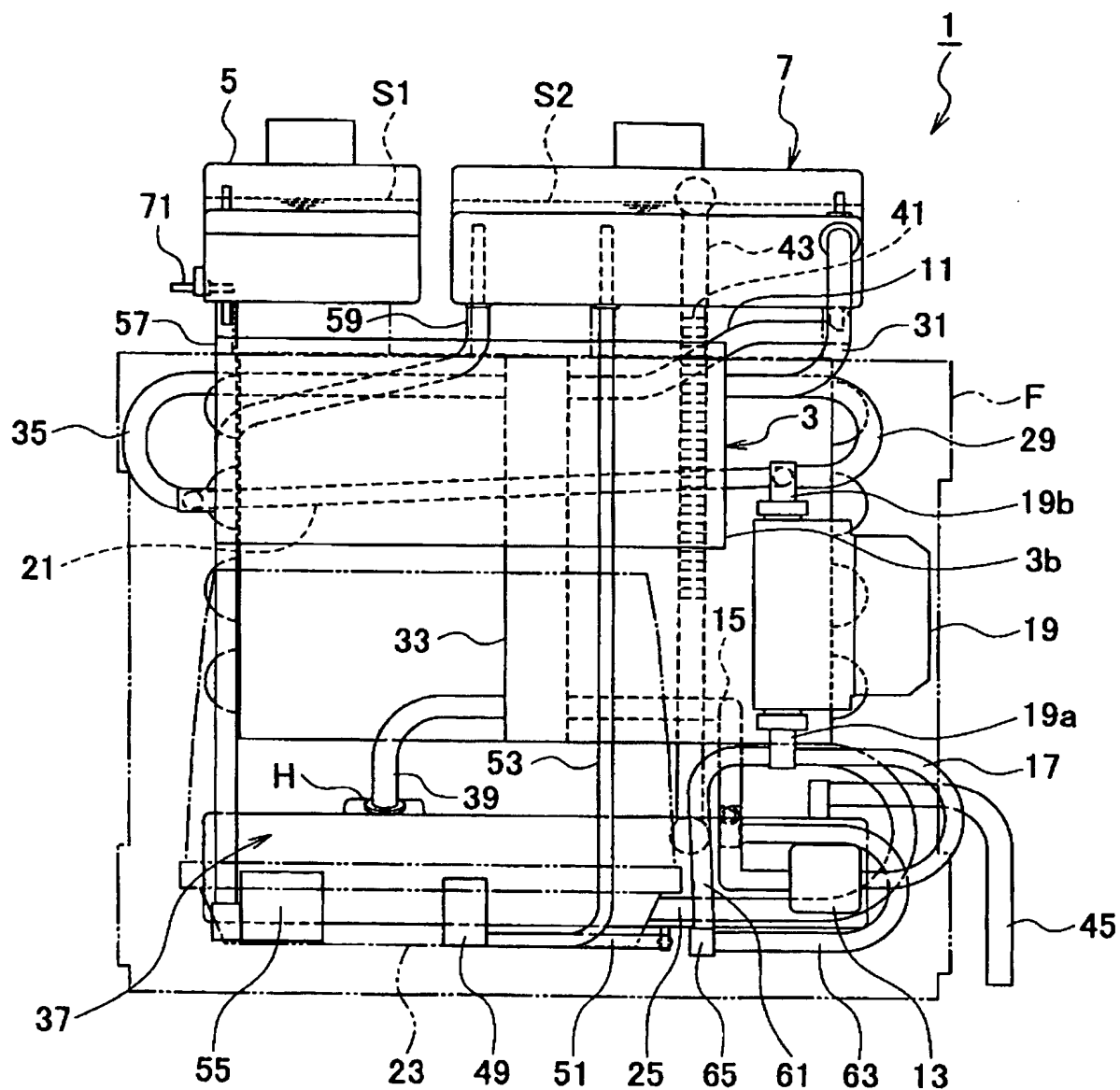
[12] 前記水タンク内の水を排出するために前記水タンクに接続されるドレインパイプをさらに含み、

前記ドレインパイプの排出側先端部を前記燃料電池セルスタック上面よりも高い位置に配置できるように、前記ドレインパイプは伸縮自在にかつその排出側先端部を回転自在に構成される、請求項1に記載のダイレクトメタノール型燃料電池システム。

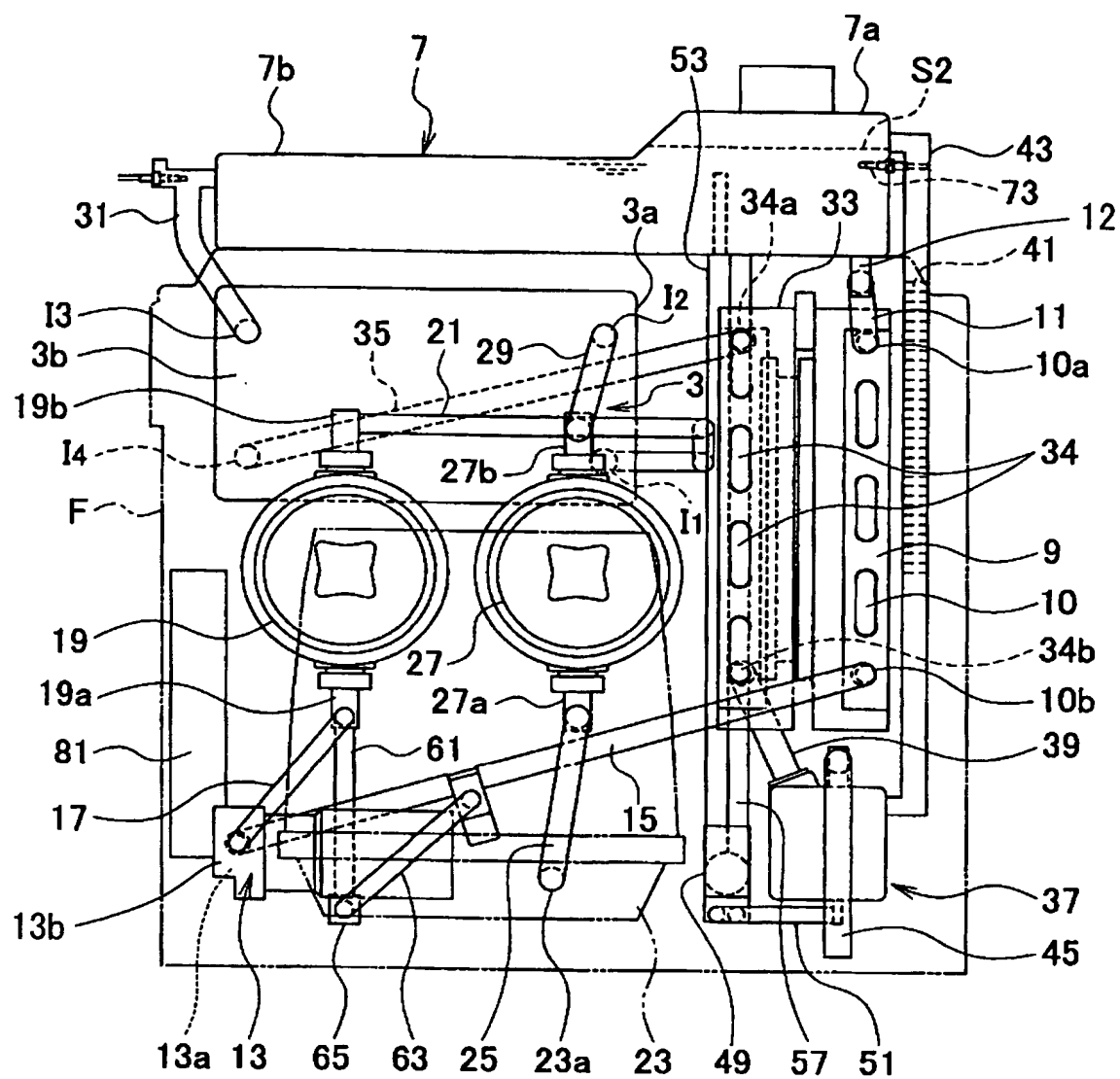
[図1]



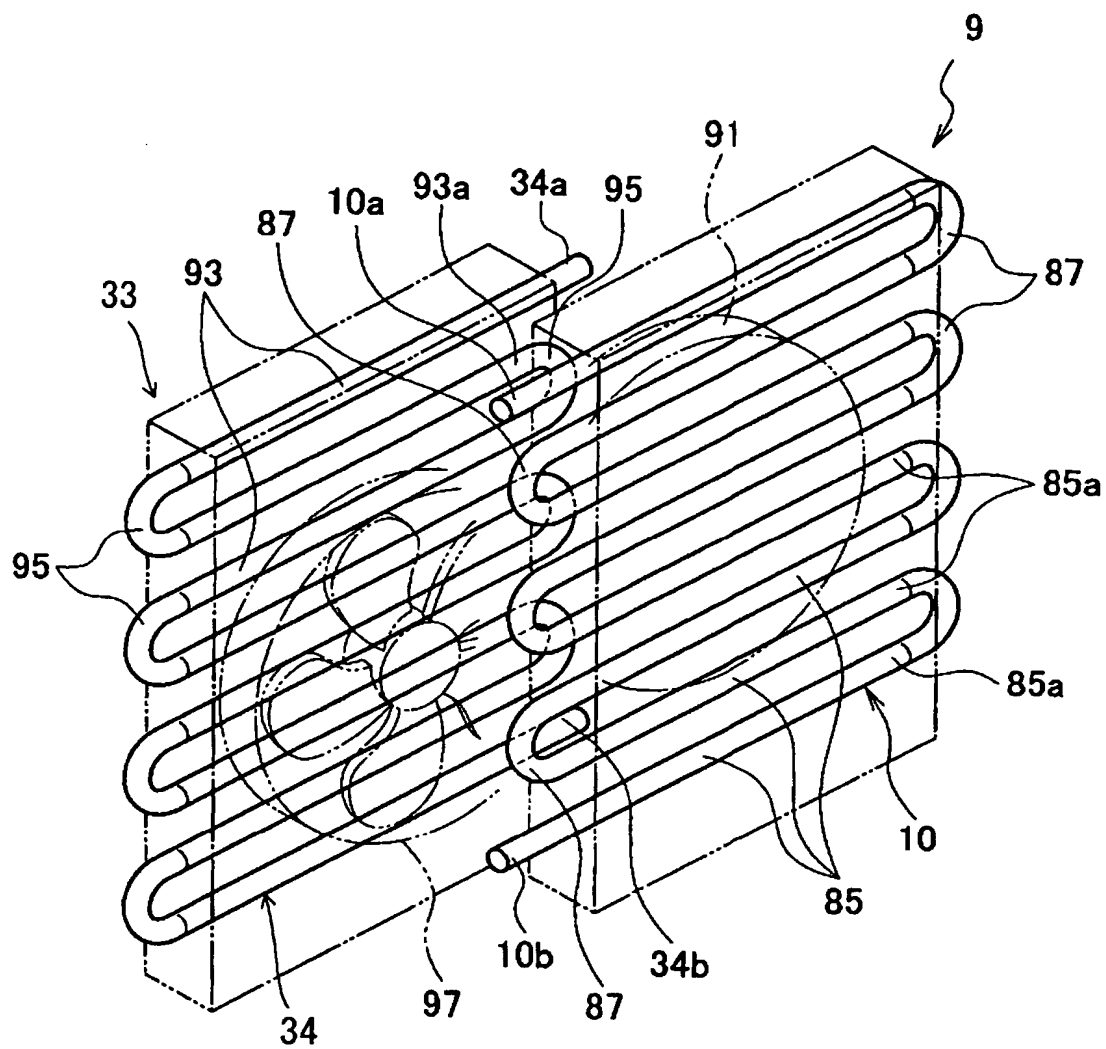
[図2]



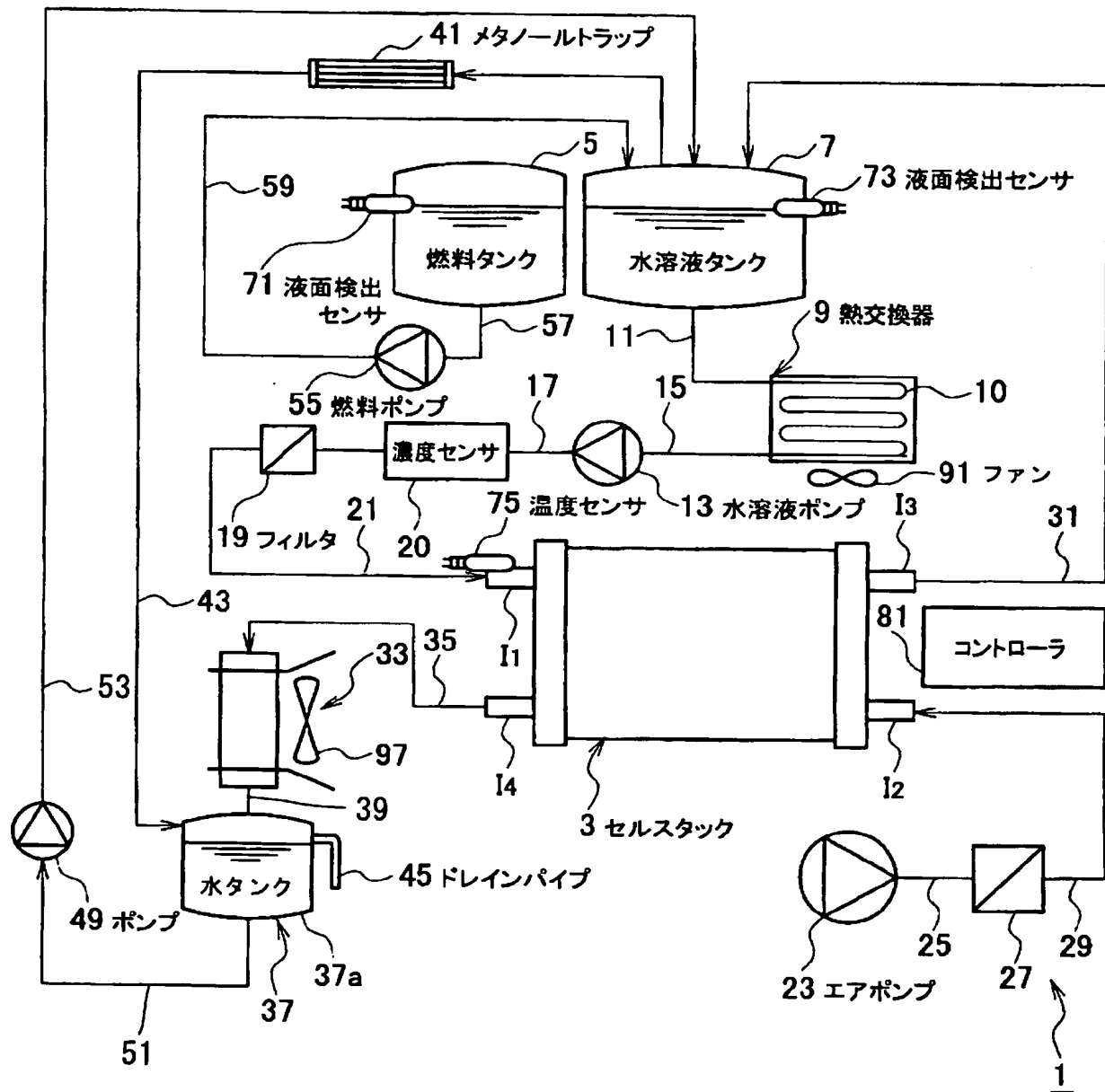
[図3]



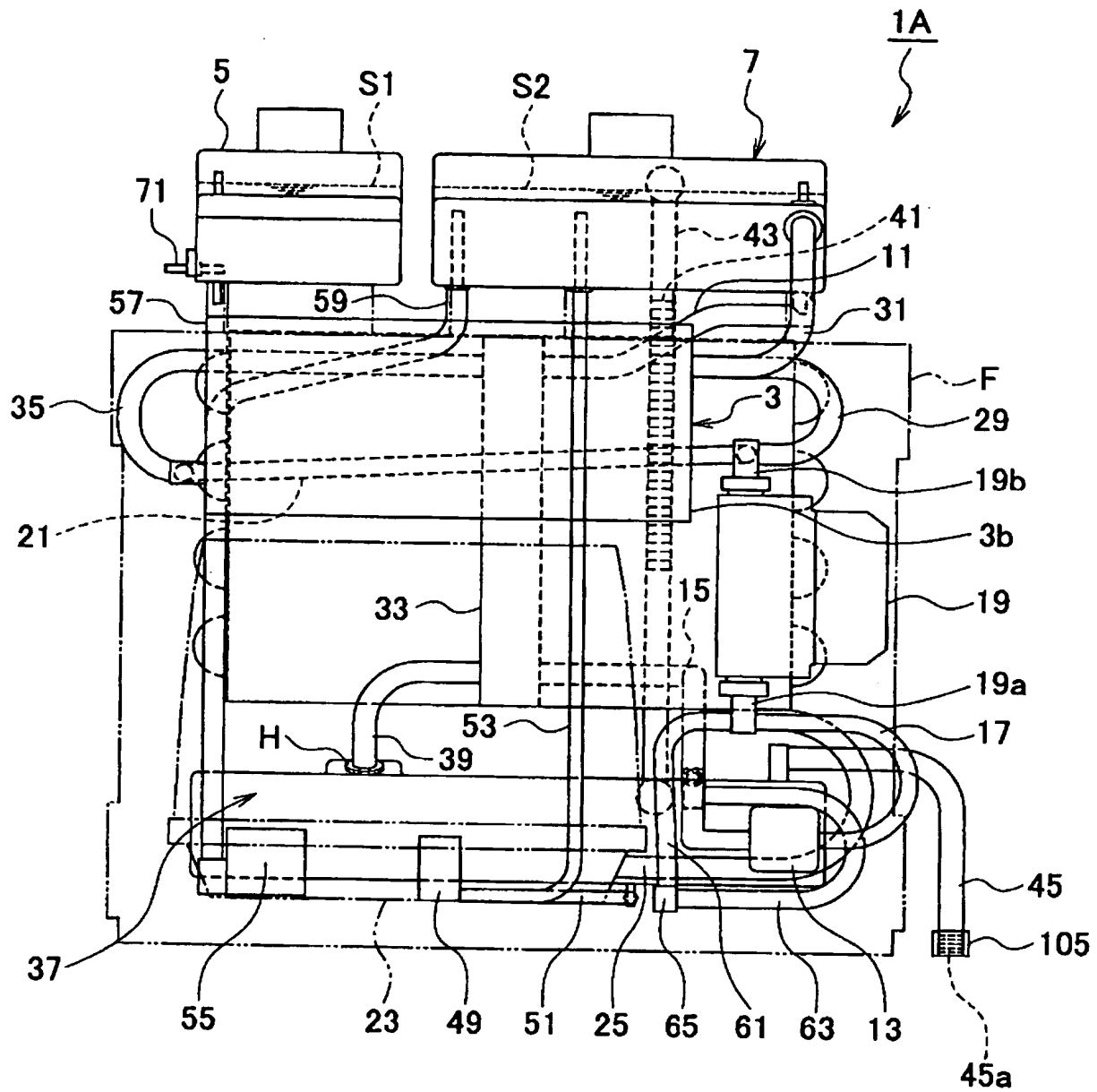
[図4]



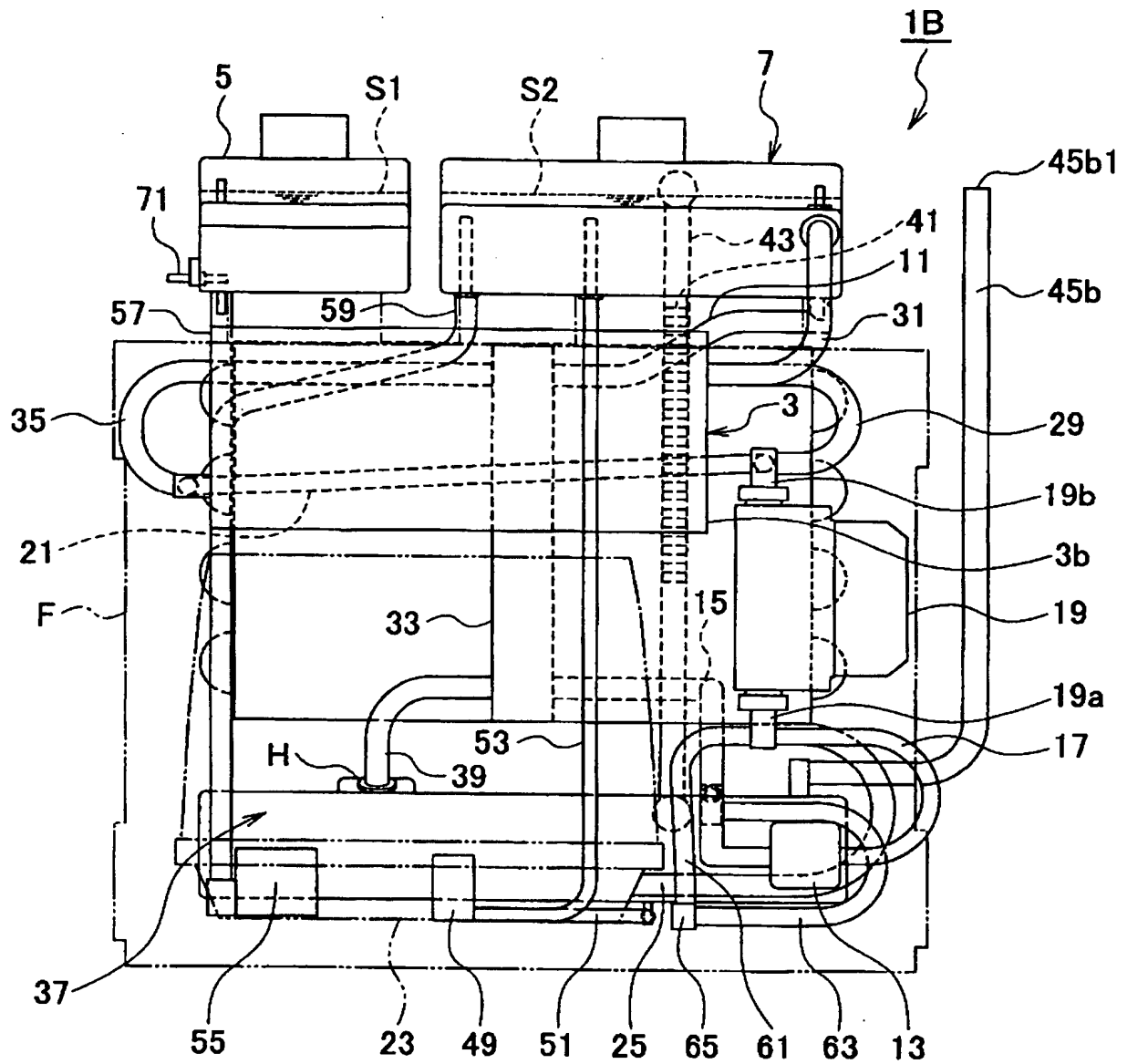
[図5]



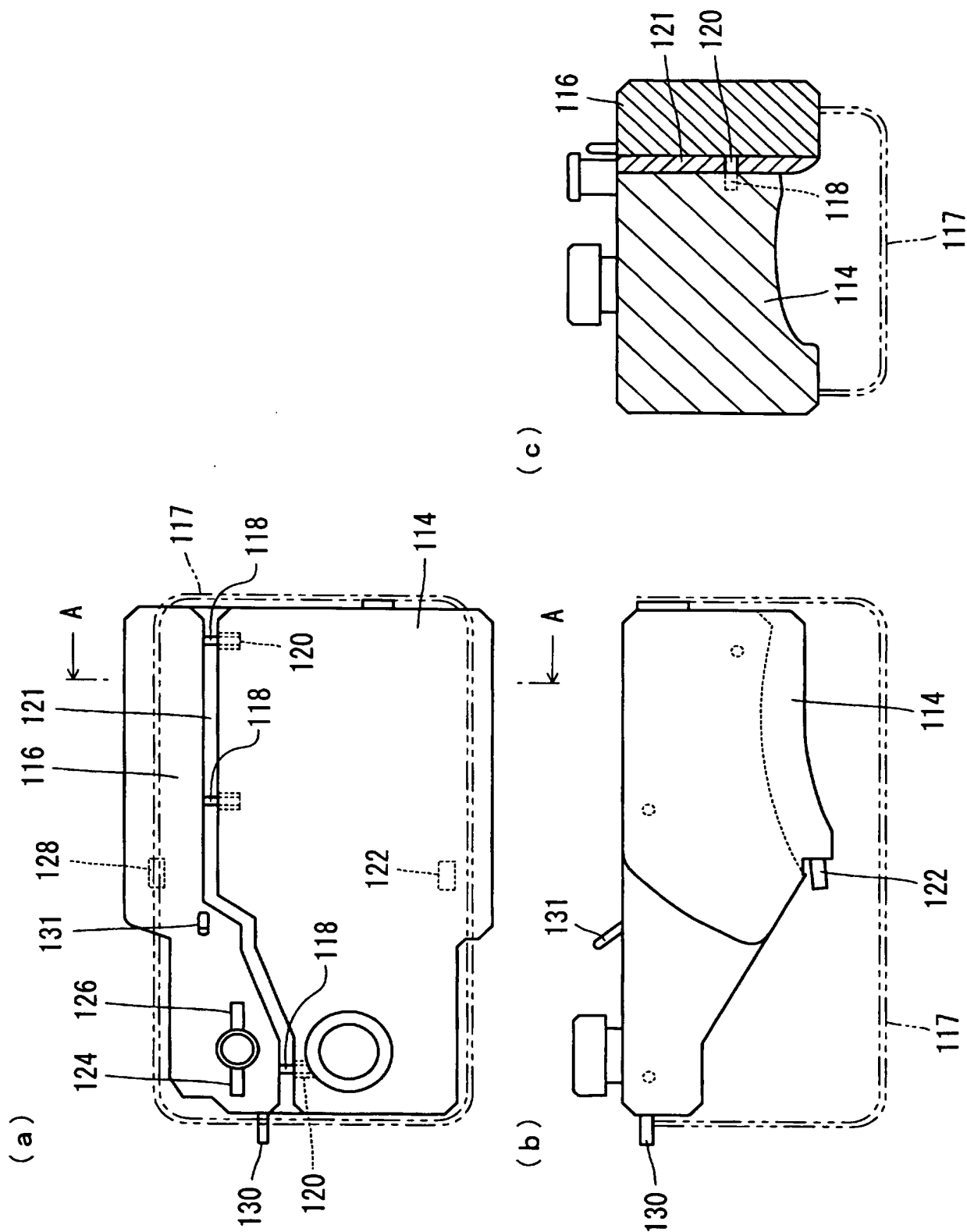
[図6]



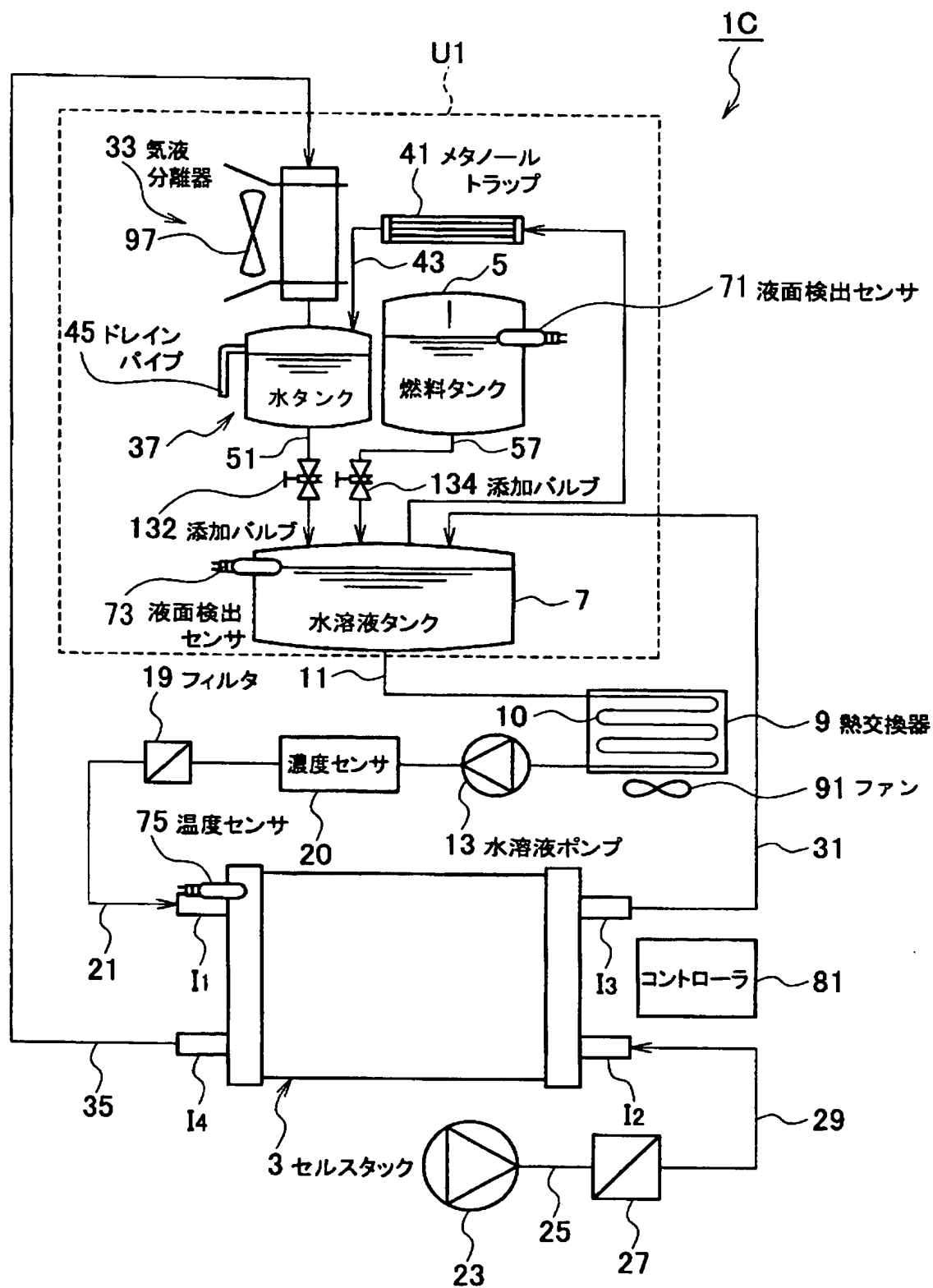
[図7]



[図8]



[図9]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/008893

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ H01M8/04

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ H01M8/04, H01M8/06

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2004
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2004	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2004

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, X	JP 2003-208910 A (Yuasa Corp.), 25 July, 2003 (25.07.03), Claims 1 to 5; Par. Nos. [0001] to [0023]; Fig. 1 (Family: none)	1, 2, 10
X	JP 2003-132924 A (Yuasa Corp.),	1, 2, 4, 11, 12
Y	09 May, 2003 (09.05.03),	1, 2, 4, 11, 12
A	Claims 1 to 3; Fig. 1 (Family: none)	3, 5-10
X	JP 11-510311 A (California Institute of Technology),	1, 2, 4-9, 11, 12
Y	07 September, 1999 (07.09.99),	1, 2, 4-9, 11, 12
A	Fig. 9 & WO 97/21256 A1	3, 10



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
16 September, 2004 (16.09.04)

Date of mailing of the international search report
05 October, 2004 (05.10.04)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/008893

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	Microfilm of the specification and drawings annexed to the request of Japanese Utility Model Application No. 95634/1986 (Laid-open No. 5506/1988) (Fuji Electric Co., Ltd.), 14 January, 1988 (14.01.88), Fig. 1; page 5, line 14 to page 6, line 6 (Family: none)	1, 2, 4-9, 11, 12

国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP2004/008893

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ H01M8/04

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ H01M8/04, H01M8/06

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-2004年
 日本国登録実用新案公報 1994-2004年
 日本国実用新案登録公報 1996-2004年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
PX	JP 2003-208910 A (株式会社ユアサコーポレーション) 2003.07.25, 請求項1~5, 【0001】~【0023】, 図1 (ファミリーなし)	1, 2, 10
X	JP 2003-132924 A (株式会社ユアサコーポレーション)	1, 2, 4, 11, 12
Y	2003.05.09, 請求項1~3, 図1 (ファミリーなし)	1, 2, 4, 11, 12
A		3, 5-10

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
 「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

16.09.2004

国際調査報告の発送日

05.10.2004

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

高木 康晴

4X

9275

電話番号 03-3581-1101 内線 3477

C (続き) 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP 11-510311 A (カリフォルニア インスティテュート オブ テクノロジー) 1999.09.07, 図9、 & WO 97/21256 A1	1, 2, 4-9, 11, 12
Y		1, 2, 4-9, 11, 12
A		3, 10
Y	日本国実用新案登録出願 61-95634号 (日本国実用新案登録 出願公開 63-5506号) の願書に添付した明細書及び図面の内 容を撮影したマイクロフィルム (富士電機株式会社) 1988.01.14, 図1, 第5頁第14行~第6頁第6行 (ファミリーなし)	1, 2, 4-9, 11, 12